```
DIALOG(R) File 351: Derwent WPI
(c) 2006 Thomson Derwent. All rts. reserv.
014765750
             **Image available**
WPI Acc No: 2002-586454/200263
XRPX Acc No: N02-465215
 Solid polymer fuel cell system operating method involves maintaining
 output voltage of fuel cell at predetermined threshold value, during
 change of fuel cell system service condition
Patent Assignee: MATSUSHITA DENKI SANGYO KK (MATU )
Number of Countries: 001 Number of Patents: 002
Patent Family:
                                                           Week
                             Applicat No
                                           Kind
                                                   Date
Patent No
             Kind
                    Date
                            JP 2000331975
                                                           200263 B
                  20020517
                                            Α
                                                 20001031
JP 2002141090 A
              B2 20050817 JP 2000331975
                                            Α
                                                 20001031
                                                           200554
JP 3685039
Priority Applications (No Type Date): JP 2000331975 A 20001031
Patent Details:
Patent No Kind Lan Pg
                        Main IPC
                                     Filing Notes
JP 2002141090 A 6 H01M-008/04
                                     Previous Publ. patent JP 2002141090
JP 3685039
             B2
                    7 H01M-008/04
Abstract (Basic): JP 2002141090 A
       NOVELTY - The output voltage of a fuel cell in the fuel cell system
    is maintained at a predetermined threshold value, when service
    condition of the fuel cell system is changed for cooling the fuel cell.
        USE - Solid polymer fuel cell system for power generation.
        ADVANTAGE - By maintaining the fuel cell output voltage at
    predetermined threshold voltage, the battery property is recovered,
    thereby attaining a long life for the fuel cell system.
        DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows a graph depicting the
    durable characteristics of the fuel cell. (Drawing includes non-English
    language text).
        pp; 6 DwgNo 1/4
Title Terms: SOLID; POLYMER; FUEL; CELL; SYSTEM; OPERATE; METHOD; MAINTAIN;
  OUTPUT; VOLTAGE; FUEL; CELL; PREDETERMINED; THRESHOLD; VALUE; CHANGE;
  FUEL; CELL; SYSTEM; SERVICE; CONDITION
Derwent Class: X16
International Patent Class (Main): H01M-008/04
International Patent Class (Additional): H01M-008/10
File Segment: EPI
```

# (19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出顧公開番号 特開2002-141090 (P2002-141090A)

(43)公開日 平成14年5月17日(2002.5.17)

(51) Int.Cl.7		識別記号	FΙ		ž	i-7]-h*(多考)
H01M	8/04		H01M	8/04	P	5H026
	8/10			8/10		5H027

## 審査請求 未請求 請求項の数4 OL (全 6 頁)

(21)出願番号	特顧2000-331975(P2000-331975)	(71)出願人	000005821 松下電器産業株式会社
(22)出顧日	平成12年10月31日(2000.10.31)		大阪府門真市大字門真1006番地
(ce) max n	- Wate-101101 H (2000: 10: 01)	(72)発明者	竹口 伸介
			大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器 産業株式会社内
		(72)発明者	日下部 弘樹
			大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器 産業株式会社内
		(74)代理人	100097445
			弁理士 岩橋 文雄 (外2名)
			最終頁に続く

# (54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池システムの運転方法

#### (57)【要約】

【課題】 従来の固体高分子型燃料電池システムの、シ ステムの高効率化と電池の安定性を維持するための運転 条件では、連続運転をすると電池電圧が低下した。 【解決手段】 燃料電池の出力電圧が予め定められたし きい値より低下すると、運転条件を一定時間切り替えて 運転する。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料ガスと酸化剤ガスとで発電を行う燃料電池と、発電原料ガスから前記燃料ガスを生成する燃料生成器と、前記燃料電池の運転に伴う発熱を一定温度に保つように前記燃料電池の内部を冷却する冷却媒体手段を備えた燃料電池システムにおいて、燃料電池システムの運転条件を切り替え、燃料電池の出力電圧を初期値に保つことを特徴とする固体高分子型燃料電池システムの運転方法。

【請求項2】 前記運転条件が、前記燃料電池の内部を冷却する冷却媒体の温度の低下、前記燃料ガスの流量の減少、前記酸化剤ガスの流量の減少、前記燃料ガスへの加湿量の増加、前記酸化剤ガスへの加湿量の増加、あるいは前記燃料電池で発電された電力を消費する負荷量の増加のうちの1つ、あるいは複数の条件の組み合わせである請求項1記載の固体高分子型燃料電池システムの運転方法。

【請求項3】 前記運転条件が、前記燃料ガスと前記酸 化剤ガス、前記燃料電池の内部を冷却する冷却媒体、および前記燃料電池の発電量を消費する負荷を、一定時間 停止することである請求項1記載の固体高分子型燃料電 池システムの運転方法。

【請求項4】 燃料電池の内部が複数のセルから構成され、前記セル毎に燃料ガスおよび酸化剤ガスの流量を任意に変更できる燃料電池であって、前記セル毎に燃料ガスおよび酸化剤ガスの流量を変更して運転することを特徴とする固体高分子型燃料電池システムの運転方法。

## 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子型燃料 電池を用いて発電を行う固体高分子型燃料電池システム の運転方法に関する。

#### [0002]

【従来の技術】固体高分子を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。

【0003】従来では、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜の両面に、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒反応層を形成し、この触媒反応層の外面に、燃料ガスの通気性と、電子導電性を併せ持つ拡散層を形成し、この拡散層と触媒反応層とを合わせて電極としている。また、供給する燃料ガスが外にリークしたり、二種類の燃料ガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットを配置している。このシール材やガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立て、これを、MEA(電極電解質膜接合体)と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電気的に直列に接

続するための導電性のセパレータ板を配置し、セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成している。ガス流路は、セパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

【0004】この溝に反応ガスを供給するためには、ガ ス流路を形成したセパレータ板に、貫通した孔を設け、 ガス流路の出入り口をこの孔まで通し、この孔から直接 反応ガスを各流路に分岐しながら供給する必要がある。 ここで、この各流路に反応ガスを供給するための貫通孔 のことをマニホールド孔と呼んでいる。燃料電池は運転 中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するた めに、冷却媒体等で冷却する必要がある。通常、1~3 セル毎に冷却媒体を流す冷却部をセパレータとセパレー タとの間に挿入するが、セパレータの背面に冷却媒体流 路を設けて冷却部とする場合が多い。この場合、セパレ ータには冷却媒体を各冷却媒体流路に分配するためのマ ニホールド孔も必要となる。これらのMEAとセパレー タおよび冷却部を交互に重ねていき、10~200セル 積層した後、集電板と絶縁板を介し、端板でこれを挟 み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電 池の構造である。

#### [0005]

【発明が解決しようとする課題】従来の固体高分子型燃料電池は、電池性能を維持するためには高分子膜を湿らせてイオン導電性を一定に保つことが必要である。したがって、高加湿な燃料ガス、酸化剤ガスを燃料電池へ供給して運転することが望ましい。しかし、システム上では各ガスを高加湿にするためには水を気化する際に莫大なエネルギーが必要になり、それによってシステム全体の効率の低下を招いてしまう。また、供給ガスを高加湿にしての運転ではセパレータ流路やMEA拡散層での水による閉塞で電極への燃料ガス、酸化剤ガスの供給が不足してしまい、燃料電池システムとして安定して運転できなくなるという課題がある。

【0006】従って、水の気化熱を抑え、安定に電池を動作させるために加湿量を減らしたり、水の閉塞を防止するために燃料ガス、酸化剤ガス流量を増やして、ガス流速を増加させ物理的に水を排出しながら運転していた。そのため、MEA内の経時的な乾きによって電池性能が低下してしまっていた。

【0007】このように、従来の固体高分子型燃料電池システムでは、システムの高効率化と電池の安定性を維持するための運転条件で、連続運転をすると電池電圧が低下してしまうことが課題であった。

#### [0008]

【課題を解決するための手段】本発明の固体高分子型燃料電池の運転方法は、燃料ガスと酸化剤ガスとで発電を行う燃料電池と、発電原料ガスから前記燃料ガスを生成

する燃料生成器と、前記燃料電池の運転に伴う発熱を一定温度に保つように前記燃料電池の内部を冷却する冷却 媒体手段を備えた燃料電池システムにおいて、燃料電池 システムの運転条件を切り替え、燃料電池の出力電圧を 初期値に保つことを特徴とする。

【0009】このとき、冷却媒体温度の低下、燃料ガスの流量の減少、酸化剤ガスの流量の減少、燃料ガスへの加湿量の増加、酸化剤ガスへの加湿量の増加、あるいは燃料電池で発電された電力を消費する負荷量の増加の中で、1つあるいは複数個の条件を組み合わせることが有効である。

【0010】また、運転条件として、燃料電池へ供給される燃料ガスと酸化剤ガス、冷却媒体、および負荷を予め定められた時間、停止することが有効である。

【0011】さらに、積層している燃料電池内を複数のセル群に分割し、セル群毎に燃料ガスおよび酸化剤ガスの流量を任意に変更できる構造を持つ燃料電池であって、セル群毎に燃料ガスおよび酸化剤ガスの流量を変更することが有効である。

#### [0012]

【発明の実施の形態】本発明の特徴は、燃料電池の出力 電圧低下時に運転条件を切り替えることで劣化した電池 性能を容易に回復させる運転方法を見出したことである。

【0013】本発明の実施の形態で使用する用語「しきい値」は、燃料電池システムの出力電圧が初期値よりも低下した場合の燃料電池スタック総出力電圧の値である。

#### [0014]

【実施例】(実施例1)まず、30 nmの平均一次粒子 径を持つ導電性カーボン粒子であるケッチェンブラック EC (オランダ国、AKZO Chemie社)を用い て、平均粒径約30%の白金粒子を50重量%担持した ものを、空気極側の触媒とした。また、このケッチェン ブラックECに、平均粒径約30Åの白金粒子とルテニ ウム粒子とを、それぞれ25重量%担持したものを燃料 極極側の触媒とした。この触媒粉末をイソプロパノール に分散させた溶液に、パーフルオロカーボンスルホン酸 の粉末をエチルアルコールに分散したディスパージョン 溶液を混合し、ペースト状にした。このペーストを原料 としスクリーン印刷法をもちいて、厚み250μmのカ -ボン不織布の一方の面に電極触媒層を形成した。形成 後の反応電極中に含まれる白金量は0.5mg/cm 2、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は1.2mg /cm2となるよう調整した。

【0015】これらの燃料極側および酸化極側電極は、電極より一回り大きい面積を有するプロトン伝導性高分子電解質膜の中心部の両面に、印刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合した。ここでは、プロトン伝導性高分子電解質として、パーフル

オロカーボンスルホン酸を薄膜化したもの(米国デュボ ン社製:ナフィオン112)を用いた。さらに、電極の 外周には、電解質膜を挟んで両側に、セパレータと同一 の形状に打ち抜かれたガスケットをホットプレスによっ て接合し、電極/電解質接合体(MEA)を作成した。 【0016】このMEAをセパレータ板で挟み込んで単 電池の構成とした。セパレータ板の作成は、カーボン粉 末材料を冷間プレス成形したカーボン板に、フェノール 樹脂を含浸・硬化させガスシール性を改善した樹脂含浸 したものを用い、これに切削加工でガス流路を形成し た。セパレータの大きさは10cm×20cm、厚さは 4mmであり、溝部は幅2mmで深さ1.5mmの凹部 であり、この部分をガスが流通する。また、ガス流路間 のリブ部は幅1mmの凸部である。また、酸化剤ガスの マニホルド孔と、燃料ガスのマニホルド孔と、冷却媒体 のマニホルド孔を、セパレータに形成した。また、ガス 流通路と、マニホールド孔の周りに、ポリイソブチレン に導電性カーボンを分散させた導電性のガスシール剤 で、ガスシール部を形成した。

【0017】以上のように作成したMEAの両面に、導電性セパレータの表面の燃料ガス流通側と、導電性セパレータの裏面の酸化剤ガス流通側とを接合し、単電池Aとした。また、MEAの両面に、導電性セパレータの表面の燃料ガス流通側と、導電性セパレータの裏面の冷却媒体流通側とを接合し、単電池Bとした。次に、単電池Aと単電池Bとを1セルずつ交互に積層し、合計で50セル積層した。

【0018】本実施例で作成した固体高分子型燃料電池 スタックを用いて本発明を説明する。

【0019】運転の条件は、模擬改質ガス(水素80体 積%、二酸化炭素20体積%、一酸化炭素50ppm) と、空気を酸化剤ガスとして、水素利用率80%、酸素 利用率30%、水素加湿バブラー温度75℃、空気加湿 バブラー温度50℃、電池温度75℃、電流密度0.3 A/c m<sup>2</sup>で連続運転を行った。燃料電池スタック総出 力電圧のしきい値を34Vとして、連続試験中にその値 を下回るたびに、電池温度を70℃に下げ、酸素利用率 を60%、空気加湿バブラー温度を60℃に変更して1 時間運転した。その運転後、初期の運転条件に戻して連 続試験を再開した。その結果を図1に示す(実践)。図 には従来例として連続して運転した結果についても併記 した(点線)。図より明らかなように、従来の運転方法 では時間とともに平均セル電圧が低下してしまっていた が、本実施例の運転方法では任意の電圧幅内で電池性能 が維持されていることが確認できた。

【0020】(実施例2)次に、本発明の第2の実施例について説明する。本実施例では試験に使用した電池、連続運転条件、および燃料電池スタックの総電圧のしきい値は全て実施例1と同一とした。しかし、しきい値を下回るたびに電池からの負荷、燃料ガス、酸化剤ガスの

供給および冷却媒体の循環を3時間完全に停止した。その後、前記の連続運転条件で連続試験を再開した。その結果を図2に示す。実施例1同様に任意の電圧幅内で電池性能が維持されていることが確認できた。なお、本実施例では、実施例1の運転条件の変更に対して、運転を停止することで容易に同様の効果が得られた。

【0021】(実施例3)次に、本発明の第3の実施例 について説明する。本実施例で作製した燃料電池の構造 を図3に示す。本実施例では実施例1で説明した電池と 同じ燃料電池スタック1を用い、外部マニホールド方式 で燃料電池スタック1の6辺に均等に外部マニホールド 2、3を配置した。また、酸化剤ガスの供給を2つのセ ル群に分割することのできる電池とした。つまり、流量 調整バルブ4によって流量が調整された酸化剤ガスが酸 化剤ガス供給配管5を通って酸化剤分割外部マニホール ド2から燃料電池スタック1の上段と下段にそれぞれ調 整された流量を導入することができる。本実施例では、 燃料電池スタック1の上段と下段両方の連続運転条件 と、燃料電池スタックの総電圧のしきい値は実施例1と 同一とした。連続試験中にそのしきい値を下回るたび に、空気加湿バブラー温度を65℃に、燃料電池スタッ クの上段は酸素利用率を30%に、下段の酸素利用率を 70%に変更し、その他の運転条件は連続運転条件とし て、2時間運転をした。その後、上段と下段の条件を逆 にしてさらに2時間運転をした。そして、初期の連続運

転条件に戻して連続試験を再開した。その結果を図4に示す。本実施例では、実施例1および2に比べ、運転切換時の燃料電池スタックの出力電圧を最小限に抑えられることが確認できた。なお、複数の積層電池を組み合わせる場合も同様の効果があった。

#### [0022]

【発明の効果】本発明によると、電池性能が劣化してしまった燃料電池スタックを運転条件を変更しての運転で性能回復ができるため、燃料電池システムとして長寿命化が図れる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施例の燃料電池の耐久特性を 示すグラフ

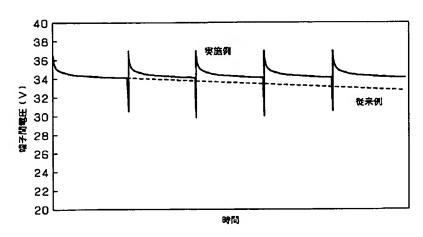
【図2】本発明の第2の実施例の燃料電池の耐久特性を 示すグラフ

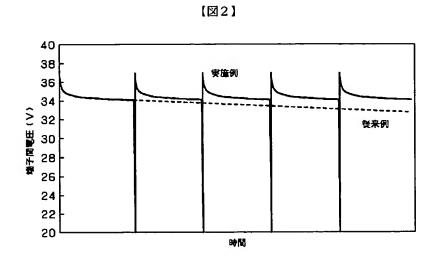
【図3】本発明の第3の実施例の燃料電池を示す斜視図 【図4】本発明の第3の実施例の燃料電池の耐久特性を 示すグラフ

#### 【符号の説明】

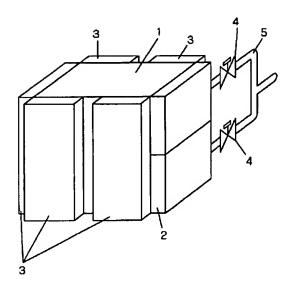
- 1 燃料電池スタック
- 2 酸化剤分割外部マニホールド
- 3 外部マニホールド
- 4 流量調整バルブ
- 5 酸化剤ガス供給配管



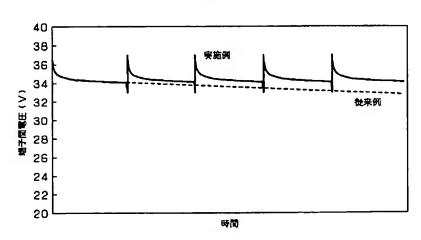








【図4】



# !(6) 002-141090 (P2002-ch械坑

## フロントページの続き

(72)発明者 小原 英夫

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

(72)発明者 山埼 達人

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

(72)発明者 長谷 伸啓

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

(72)発明者 山本 義明

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

Fターム(参考) 5HO26 AA06 CC03 CC08

5H027 AA06 BA01 CC06 KK22 KK25

KK46 KK48 KK52 MM04 MM09